






## Process for preparation of isoprene

**Patent number:** JP50062905  
**Publication date:** 1975-05-29  
**Inventor:**  
**Applicant:**  
**Classification:**  
**- international:** C07C11/18; C07C1/20  
**- european:** C07C11/18; C07D319/06  
**Application number:** JP19740107856 19740920  
**Priority number(s):** DE19732347841 19730922

**Also published as:**

 US3972955 (A1)  
 NL7412420 (A)  
 LU70954 (A)  
 GB1433715 (A)  
 FR2244738 (A1)

more >>

**Report a data error**

Abstract not available for JP50062905

Abstract of corresponding document: **US3972955**

In the preparation of isoprene by reacting isobutene with formaldehyde to produce 4,4-dimethyl-m-dioxane in a first stage, and decomposing the dioxane to isoprene and formaldehyde in a second stage, formaldehyde in the effluent streams of either or both of said stages is recovered. The formaldehyde-containing liquids are distilled to separate high boilers; the overhead, which is formaldehyde-rich, is extracted with isobutene feed to the process, whereby the isobutene extracts low boilers from the formaldehyde-containing liquid; and the formaldehyde-containing liquid, having at some point after said distillation been treated with an alkaline material, is subjected to rectification to produce as head product the recovered formaldehyde.

---

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

優先権主張	
国名	ドイツ連邦共和国
出願日	1973年9月22日
出願番号	第P2347841.3号
出願日	年 月 日
出願番号	第 年 月 日
出願日	年 月 日
出願番号	第 年 月 日

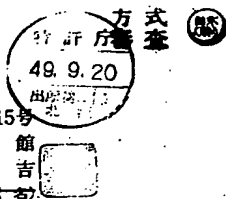


特 許 願 (B)

昭和49年9月20日

特許庁長官 斎藤 英 雄 殿

- 発明の名称 セイボウ  
イソブレンの製法
- 発明者  
住 所 ドイツ連邦共和国レーフェルクーゼン・グラーツストラッセ14  
氏 名 クルト・ハルコウル (ほか3名)
- 特許出願人  
住 所 ドイツ連邦共和国レーフェルクーゼン(番地なし)  
名 称 バイエール・アクチエンゲゼルシャフト  
(氏名)  
代 表 者 ヨゼフ・シュトゥツクハウゼン  
国 籍 ドイツ連邦共和国  
4. 代 理 人 〒107  
住 所 東京都港区赤坂1丁目9番15号  
日 本 自 転 車 会 館  
氏 名 (6078) 弁護士 小 田 島 平 吉  
電 話 585-2256



明 細 書

1. [ 発 明 の 名 称 ]

イソブレンの製法

2. [ 特 許 請 求 の 範 囲 ]

第1段でイソブテンをホルムアルデヒドと反応させて4,4-ジメチル- $\alpha$ -ジオキサンを製造し、第2段で4,4-ジメチル- $\alpha$ -ジオキサンを分解してイソブレンを製造し、但し第1段及び/又は第2段に起因するホルムアルデヒド含有水性相を随時いずれか他のホルムアルデヒド含有水溶液と一緒に蒸留して高沸点成分を釜底生成物として分離し、留出物をC。炭化水素で抽出し、この抽出工程を出るC。炭化水素流を第1反応段階に供給し、抽出された水性ホルムアルデヒド溶液をアルカリと混合して精留塔へ導入し、そこから

① 日本国特許庁

公開特許公報

① 特開昭 50-62905

④ 公開日 昭50/(1975) 5.29

② 特願昭 49-107856

② 出願日 昭49.(1974) 9.20

審査請求 有 (全9頁)

庁内整理番号 7038 43

6430 43

7038 43

⑤ 日本分類

16 B123

16 B120.14

16 B120.15

⑤ Int.Cl<sup>2</sup>

C07C 11/18

C07C 1/20

実質的にすべてのホルムアルデヒドを頭頂生成物として回収し、一方実質的にホルムアルデヒドを含有しない水性流出物を塔底生成物として取り出すことを特徴とするイソブレンの製造法。

3. [ 発 明 の 詳 細 な 説 明 ]

本発明は、イソブテンをホルムアルデヒドと反応させ及びホルムアルデヒドを回収することからなるイソブレンの製造法に関する。

従来提案されている方法によれば、イソブレンは最初に酸触媒の存在下にイソブテン又はイソブテンを含有する炭化水素留分を水性ホルムアルデヒドと反応させて4,4-ジメチル- $\alpha$ -ジオキサンを製造し、次いでこれを開裂させてイソブレン及びホルムアルデヒドを生成せしめ、但しこの第2段階を酸触媒の存在下に高温下で行なうこと

によりイソブテン及びホルムアルデヒドから製造することができる。この種の方法は、例えば次の文献に記載されている：*Erdöl und Kohle* 15, 274~282及び348~352(1962)、*Z. vser. chim. Obec.* 14(3), 318~319(1969)、独国特許公報第1271106号及び第1233880号。

これらの方法においてはホルムアルデヒドを含有する水性相が得られる。これらの方法を経済的にし且つ容易に清澄する流出水を得るためには、水性相のホルムアルデヒドをできるだけ完全に回収しなければならない。特にホルムアルデヒドはイソブテン及びホルムアルデヒドからのイソブレン製造の第1段階で使用するのに適当な形で回収しうることが有利である。

m-ジオキサンの合成に用いるC<sub>4</sub>-炭化水素(イソブテン含有)で抽出しうることが独国公開公報第1618331号及び第2044623号に開示されている。そのような抽出は、ホルムアルデヒドを蒸留によつて完全且つ容易に濃縮せしめうるに十分な程有機不純物を水性ホルムアルデヒド相から除去しない。

他の抽出法、即ちイソブテン及びホルムアルデヒドからイソブレン製造中に得られる水性相を精製する方法は、独国特許第1258861号に開示されている。この方法では、イソブレン合成の第1及び第2段階で得られる水性相を別々に反応の第1段階からの未反応C<sub>4</sub>炭化水素で抽出する。また独国特許第1258861号には、抽出後の水性相から残る液体がホルムアルデヒド以外の有

4,4'-ジメチル-m-ジオキサンの分解の第2段階からはホルムアルデヒドを回収することができ、これは例えば4,4'-ジメチル-m-ジオキサン製造のイソブテン及びホルムアルデヒド間の反応に返送しうる(独国公開公報第1,618,331号及び第2,044,623号を参照)。しかしながら、4,4'-ジメチル-m-ジオキサンに続く第1反応段階から得られ且つ有機成分でひどく汚れている稀ホルムアルデヒド水溶液は、ホルムアルデヒド回収の処理をするのが非常に困難である。

例えばこれらのホルムアルデヒド水溶液の処理に対して、特に有機成分を除去するために種々の抽出法が提案されている。

即ちこの方法の水性相を、4,4'-ジメチル-

機化合物を含有せず、従つてそのまま又は蒸発によつて濃縮させた後に再使用できることが述べられている。それにも拘らず、この方法を繰返している場合抽出後に残る液相がホルムアルデヒドとは別にある量の有機物質を依然含有していることが発見された。抽出された水性相中のホルムアルデヒドを蒸留によつて濃縮しうることの可能性は発見されなかつた。依然水性相に残る有機化合物は重合によつて時に蒸留塔を閉塞してしまふ。それ故に独国特許第1258861号による方法は、本性相に含まれているホルムアルデヒドの連続的回収及びイソブレン製造への再使用に対して決して適当でない。更にホルムアルデヒドを含有する抽出された水性相は、それに含まれるホルムアルデヒドを除去しなければ排水の微生物的処理に使

用することができない。

ホルムアルデヒドを回収するための他の可能な方法は、稀ホルムアルデヒド水溶液の、例えば蒸留による濃縮である〔J. F. ウォーカー (Walker)、Formaldehyde, レインホルド出版社 (Reinhold Publ. Co., N. Y.), 1964年〕。そのような方法では、ホルムアルデヒドは、蒸留を減圧で行なつた場合釜残生成物として濃縮された形で得られ、又は蒸留を加圧で行なつた場合流出物として濃縮された形で得られる。

しかしながらイソブレンの合成から得られる水性ホルムアルデヒド相は、ホルムアルデヒドばかりでなく、その蒸留を妨害する多くの他の有機物質を含有する。

即ちホルムアルデヒドは、これらの水性相の真

合物を蒸留又は抽出によつて除去したとしても樹脂を生成せしめる。この樹脂の生成は短時間内に加圧蒸留塔を詰らせてしまう。

それ故に今日まで水性相に含まれるすべてのホルムアルデヒドがイソブレンの製造工程に返送できるように、及び同時に排水の微生物分解が可能な排水が得られるようにイソブレンの合成から得られる稀ホルムアルデヒド含有水溶液を処理する満足な方法は発見できなかつた。しかしながら、この方法の第2段階からのホルムアルデヒド含有水溶液ばかりでなく、ホルムアルデヒドの転化が定量的でない場合の第1段階からの更に稀釈された水性ホルムアルデヒド溶液を処理してホルムアルデヒドを回収することのできる普遍的な方法が望まれてきた。更にイソブレンの合成時に得られ

る空蒸留の場合釜残生成物として濃縮形で得られるが、留出物中には揮発性に基づいて多くの割合の有機不純物が存在し、そのために留出物を排水として流すことができない。

ホルムアルデヒドを蒸留によつて処理する他の可能な方法は、加圧蒸留からなつている。しかしながら独逸公開公報第1618331号にすでに記載されているように、加圧蒸留の場合高沸点有機化合物は、蒸留を行なう前に好ましくは多段蒸発によつてホルムアルデヒド含有水性相から除去しておかなければならない。実質的に有機化合物を含まない排水はホルムアルデヒド含有の水溶液を減圧下に蒸留した場合釜残生成物として得られるが、ホルムアルデヒド含有水性相の減圧蒸留に必要な高温は加圧蒸留を行なう前に高沸点有機化

る更に稀釈された水性ホルムアルデヒド溶液も処理しうることに窺ふことができる。

それ故に本発明は、ホルムアルデヒドをイソブレン合成の2段階工程に返送する目的で該工程からの全ホルムアルデヒド溶液を処理及び濃縮し、且つ同時に実質的な目的でホルムアルデヒド及び有機化合物を含有せず、微生物による排水処理工場へ送入しうる排水を得る方法に関するものである。

本発明は、イソブテンをホルムアルデヒドと反応させ、中間体生成物として得られる4,4-ジメチル-2-ジオキサンを開裂させ、及び工程から得られるホルムアルデヒド含有水性相から回収されたホルムアルデヒドを返送し、但しイソブレン製造の第1段階(4,4-ジメチル-2-ジオキサン)の合成)から及び第2段階(4,4-ジメ

テル- $\alpha$ -ジオキサン)から得られるホルムアルデヒド水性相並びにいずれか他のホルムアルデヒド含有水溶液を精製し且つ蒸留、随時多段蒸留に供し、続いて高沸点成分を釜残生成物として除去し、留出物をホルムアルデヒドとの反応に用いるC。炭化水素(イソブテン含有)流で抽出し、この抽出工程を出るC。流を第1反応段階に供給して4,4-ジメチル- $\alpha$ -ジオキサンを製造し且つ抽出された水性ホルムアルデヒド溶液を反応中アルカリ性である化合物を添加しながら加圧操作されている精留塔に導入し、この塔から実質的にすべてのホルムアルデヒドを30~40重量%ホルマリンの形で頭頂生成物として回収し、一方ホルムアルデヒドを実質的に含有しない排水を精留塔の底部から取り出すことを特徴とするイ

質例えば ブテン-1, 3-ジオール、ジオキサンアルコール、メタノール、4-ヒドロキシ-4-メチル-テトラヒドロ- $\alpha$ -ピランを高分子量生成物並びに少量の不揮発性表面活性基質と一緒に含有していてもよい。本方法の第1及び第2段階では酸触媒を用いるから、併せられたホルムアルデヒド含有水性相もある量の酸、例えば磷酸又は硫酸も含有する。

本方法は最初に併せられたホルムアルデヒド水性相から高沸点不純物を留去することによつて行なわれる。この蒸留は1段又は多段で行なつてもよい。この蒸留に対する圧力及び温度条件は、蒸留工程に導入される基質の各成分間の副反応に基因する沈殿物の生成を防止できるように適当に選択される。なお蒸留圧力及び温度が出発酸の含

ソブレンの合成法を与える。

本方法は、合成から得られる併せられたホルムアルデヒド含有水性相を処理し且つ4,4-ジメチル- $\alpha$ -ジオキサンを分解するばかりでなく、例えば4,4-ジメチル- $\alpha$ -ジオキサンの開裂で製造されるイソブレンの精製から得られるものの如き他のホルムアルデヒド含有水性相を精製し且つ処理するために用いることができる。併せられたホルムアルデヒド含有水性相は、種々の有機不純物、例えば4,4-ジメチル- $\alpha$ -ジオキサン、第三ブタノール、イソブレンアルコール例えば1-ヒドロキシ-3-メチルブテン-3, 1-ヒドロキシ-3-メチルブテン-2, 1-ヒドロキシ-3-メチルブテン-1, 4-メチル-5,6-ジヒドロキシ- $\alpha$ -ピラン及び更に水溶性基

量を増加させるにつれて低下せしめる場合沈殿物の生成を防げるということが発見された。圧力及び温度の下限は厳密でない。条件は好ましくは沈殿物の生成を防げるように、同時に真空及び加熱又は冷却に対する過度な費用を防げるように選択される。

蒸留に供される出発物質が例えば0.01重量%又はそれ以下の濃度の磷酸又は硫酸を含有する場合には、常圧~500 Torrの圧力及び90~100℃の温度で蒸留することができる。出発物質が例えば0.01~5重量%の濃度で磷酸又は硫酸を含有する場合には、100~500 Torrの圧力及び60~90℃の温度を用いる。出発物質の酸濃度が磷酸又は硫酸1~20重量%である場合には、10~100 Torrの圧力及び25~70℃の釜温

度が使用できる。出発物質の酸含量が磷酸又は硫酸2.0重量%以上である場合には、対応して低圧及び低温で蒸留を行なう。蒸留する出発物質は好ましくは0.05～1.0重量%の磷酸を含有し、200～400 Torrの圧力及び70～80℃の釜温度を用いる。

出発物質中に酸例えば磷酸又は硫酸も含有する方法で除去される高沸点生成物は、釜残生成物として得られ、部分的に又は完全に4,4-ジメチル- $\pi$ -ジオキサンの分解段階に供給してもよい。

水及びホルムアルデヒドに加えて容易に揮発し且つ水蒸気で除去しうる得られた留出物は、続いて4,4-ジメチル- $\pi$ -ジオキサンの製造に用いられるC。炭化水素(イソブテン含有)流で抽出される。所望により、4,4-ジメチル- $\pi$ -

ルデヒド含有の水性溶液を処理する次の段階は精留塔中に行なわれる。

本発明によれば、精留塔に導入される生成物に反応中アルカリ性である無機又は有機化合物を添加するか、又はアルカリ性化合物を精留塔に直接導入する、即ち好ましくはホルムアルデヒド含有水溶液のpHを一般に4～8、好ましくは6～7に調節する。反応中アルカリ性である不揮発性化合物、好ましくは不揮発性無機化合物がこの目的に適當である。

反応中アルカリである適當な無機化合物は、周期律表第Ⅰ主及び第Ⅱ主族の金属のアルカリ性の塩、例えばこれらの金属の炭酸塩、特に炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸カルシウム及び炭酸マグネシウムである。更に反応中アルカリ性であ

ジオキサンの製造に用いられるC。炭化水素の全流を抽出に用いてもよく、また一部だけをこの方法で用いてもよい。抽出は、例えば20～50℃、好ましくは30～40℃で行なうことができる。圧力は好ましくはC。炭化水素が抽出中液体であるように選択される。この抽出工程では、流れ中で揮発する大部分の低沸点不純物、例えば4,4-ジメチル- $\pi$ -ジオキサン、イソプロペンアルコールの殆んど及びtert-ブタノールの一部が除去される。

しかしながら抽出工程を出る水性ホルムアルデヒド溶液は依然ある量の有機不純物、例えばメタノール、tert-ブタノールの一部及び続く塔中の蒸発表面上に重合体を沈殿せしめる未同定の物質の痕跡量を含有することが発見された。ホルムア

ル適當な無機化合物は、メンデレーフ周期律表の第ⅠA及びⅡA族の金属の水酸化物、特に水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化リチウム、水酸化カルシウム及び水酸化マグネシウムを含む。塩基性イオン交換樹脂も使用できるが、この場合にはイオン交換樹脂が損傷を受けないような温度で精留すべき基質を塔中の塩基性イオン交換樹脂中を通過させることが適當である。水酸化ナトリウム、水酸化カルシウム及び水酸化カリウムは特に適當な化合物である。

反応中アルカリ性である化合物は、排水に不必要な負荷をかけないために少量で使用すべきである。例えばそれは精留すべき生成物の全量に基づいて50～1000 ppm、好ましくは150～400 ppmの量で精留塔に導入される。この場合

物のホルムアルデヒド水溶液の添加は、高沸点不純物の分離後いずれの段階で導入してもよい。例えばアルカリ性化合物は、高沸点不純物の除去後留出物へ又は抽出物へ、精留塔へもしくはそれらの間の生成物流へ添加される。

C。炭化水素（イソブテン含有）での抽出後、反応中アルカリ性である化合物と予じめ混合した又は塩基性イオン交換樹脂上を通過させた水性ホルムアルデヒド溶液を精留塔に導入する。この塔は例えば3～7 Bar、好ましくは4～6 Barで操作することができる。精留塔の温度は、頂生成物が120～170℃、好ましくは130～150℃の温度を有するように調節しうる。塔底から取り出される水は実質的に有機不純物を含んでおらず、微生物による排水処理に適合である。精留塔

不純物が60～90℃、好ましくは70～80℃の温度下に塔頂から得られ且つ除去しうるように選択できる。次いでこの蒸留からの益残生成物を上述の如く操作されている精留塔へ移す。勿論反応中アルカリ性である化合物の添加もこの蒸留中又は後に行ないうる。

本発明の特別な具体例を添付図面を参照にして記述しよう。

例えば40重量%の濃度の新しいホルマリンを例えば40重量%まで濃縮した返送ホルマリン2と混合し、3で反応器5に導入する。ここでホルマリンは4で導入されるイソブテン混合物及び3で導入される酸触媒例えば硫酸と一緒に4,4-ジメチル- $\pi$ -ジオキサン合成のプリンス反応に使用される。この反応混合物を分離機6で水性

の塔頂からは30～50%水溶液の形ですべてのホルムアルデヒドが得られる。この溶液は依然少量の有機不純物を含有していてもよいが、これらはホルムアルデヒド溶液をイソブレンの製造に返送した場合必ずしも困難さを引き起こすとは限らない。例えば精留塔の塔頂のホルムアルデヒド溶液は依然少量のメタノール及びtert-ブタノールを含有していてもよい。

これらの不純物も除去する必要がある場合には、精留塔の前に位置し且つストリップング塔として操作されていてもよい他の蒸留塔でこれを行なうことができる。この場合には、先ず常圧、僅かに減圧又は僅かに加圧で操作されている蒸留塔中を抽出工程からのホルムアルデヒドを通過させる。この温度は水と共沸混合物を形成する低沸点有機

及び有機相に分離する。次いで上相の有機相を塔8で蒸留し、C。炭化水素及び反応器11で酸触媒及び水蒸気(10%)の存在下に分解してイソブレンを生成する所謂粗ジオキサンに分離する。次いで急冷させた分解生成物を分離機12で有機イソブレン相13及び反応中に生成するホルムアルデヒドを含む水性相14に分離する。本発明によれば、分解からのホルムアルデヒドを含む水性相14を4,4-ジメチル- $\pi$ -ジオキサン7の合成からの未反応のホルムアルデヒドを含む水性相と及び4,4-ジメチル- $\pi$ -ジオキサン及びイソブレン14の処理からのホルムアルデヒド含有水溶液と直接併せ、この併せた混合物を15で示す。次いで好ましくは多段蒸留機16から高沸点有機成分を塔底生成物17とし

て分離し、分解反応機 11 に 10 % から反送する。留出物 18 は大部分の水性ホルムアルデヒドを含有する。この留出液を抽出機 19 中において C。炭化水素（イソブテン含有）流で抽出する。本発明によれば、抽出された水性流 21 の pH を反応中アルカリ性である物質 21 a の添加によつて 4 ~ 8、好ましくは 6 ~ 7 に調節する。この反応中アルカリ性である物質は水溶液として添加するのが有利である。所望によりこの方法で処理した水性流 21 b は、工程を連続的に操作した場合漸次高濃度化するのを防ぐために塔 22 の頭頂生成物 23 として留去することにより低沸点有機化合物例えばメタノール、メチラール又は *tert*-ブタノールを含有していてもよい。塔底生成物 24 は最後に精留塔 25 に導入され、そこで例えば 40 %

導入できる排水を与える。

次の実施例は本方法を行なう際の例を詳細に記述する。

#### 実施例 1.

ホルムアルデヒド含有の流出水 7 及び 14 を 1 : 1 重量比で混合した。この混合物を 5.0 kg/時の速度で導管 15 から塔 16 中へ導入した。次いでこの塔を 350 Torr の圧力及び 85 °C の釜温で操作した。0.3 kg/時の速度で導管 17 から取り出される釜液生成物は主に高沸点有機化合物からなっていた。次いで C。炭化水素 18 で抽出後蒸留物流を NaOH 200 ppm の添加によつて pH 約 7 に調節し、最後に導管 24 を通してカラム 25 に送入した。この塔は 4 Bar の圧力及び 150 °C の塔底温で操作した。次いで 40 % 水性ホルムア

ルデヒド水溶液を塔頂から 1.6 kg/時の平均速度で回収し、流出水を塔底 26 から 3.1 kg/時の速度で取り出した。塔 25 の加熱蒸気の圧力は 700 時間以上の操業後も変化しなかつた。循環蒸発機の導管、及び蒸発及び濃縮部分の充填体は重合体を有していなかつた。

本発明による方法は、先一にホルムアルデヒド及びイソブテンからのイソブレンの製造中に生成する希釈された不純な水溶液からすべてのホルムアルデヒドを回収するのを可能にする。更に本方法はホルムアルデヒドを直接工程に返送しうるとうな濃度し、同時に微生物による下水処理へ直接

ルデヒド水溶液を塔頂から 1.6 kg/時の平均速度で回収し、流出水を塔底 26 から 3.1 kg/時の速度で取り出した。

塔 25 の加熱蒸気の圧力は 700 時間以上の操業後も変化しなかつた。循環蒸発機の導管、及び蒸発及び濃縮部分の充填体は重合体を有していなかつた。

#### 実施例 2

ホルムアルデヒドを含有する流出水混合物 15 を 18.8 kg/時で塔 16 に導入した。次いで導管 17 を通して高沸点有機化合物を 1.3 kg/時で塔底から取り出した。17.5 kg/時を塔頂から留去し、抽出機中において C。炭化水素混合物 12.6 kg/時で抽出した。次いで抽出された平均 15.9 kg/時のホルムリン溶液を塔 25 中へ導入した。両方

の塔は実施例 1 に示した条件下に操作した。流出水 26 を塔 25 の塔底から 10.1 kg/時で取り出し、一方塔頂生成物 5.8 kg/時を濃ホルマリンとして 4, 4-ジメチル- $\alpha$ -ジオキサンの合成に返送した。

生成物の塔 25 の蒸発部分における滞留時間が短かいにも拘らず、蒸発機導管（生成物の出口端）が固まり且つ閉塞されたために操作は約 250 時間継続できたにすぎなかつた。この期間中加熱水蒸気の圧力は平均 6 から 11 まで上昇した。蒸発部分の充填物も重合体でひどく硬われた。

なお、本発明の願極及び関連事項を要約すれば以下の通りである。

1. 第 1 段でイソブテンをホルムアルデヒドと反応させて 4, 4-ジメチル- $\alpha$ -ジオキサン

pH 4~8 に調節することを特徴とする方法。

3. 上記 1 又は 2 の方法において、アルカリを 50~1000 ppm の量で添加することを特徴とする方法。

4. 上記 1~3 のいずれかの方法において、アルカリが不揮発性無機化合物であることを特徴とする方法。

5. 上記 1~4 のいずれかの方法において、アルカリが水酸化ナトリウム、水酸化カリウム及び/又は水酸化カルシウムであることを特徴とする方法。

6. 上記 1~5 のいずれかの方法において、イソブレン製造の段階（4, 4-ジメチル- $\alpha$ -ジオキサンの分解）から得られる粗ホルムアルデヒド含有水溶液を最初にいずれの方法でも精製せ

を製造し、第 2 段で 4, 4-ジメチル- $\alpha$ -ジオキサンを分解してイソブレンを製造し、但し第 1 段及び/又は第 2 段に基因するホルムアルデヒド含有水性相を随時いずれか他のホルムアルデヒド含有水溶液と一緒に蒸留して高沸点成分を益残生成物として分離し、留出物を C。炭化水素で抽出し、この抽出工程を出る C。炭化水素流を第 1 反応段階に供給し、抽出された水性ホルムアルデヒド溶液をアルカリと混合して精留塔へ導入し、そこから実質的にすべてのホルムアルデヒドを頭頂生成物として回収し、一方実質的にホルムアルデヒドを含有しない水性流出物を塔底生成物として取り出すことを特徴とするイソブレンの製造法。

2. 上記 1 の方法において、抽出された水性ホルムアルデヒド溶液をアルカリの添加によつて

ずにホルムアルデヒドの回収に用いることを特徴とする方法。

7. 上記 1~6 のいずれかの方法において、ホルムアルデヒドを 30~40 重量%のホルマリンとして回収することを特徴とする方法。

8. 上記 1~7 のいずれかの方法において、アルカリ添加後の抽出された水性ホルムアルデヒド溶液に含有される低沸点化合物又は揮発性化合物の残部を精留塔の前方にストリップング塔で除去することを特徴とする方法。

9. 上記 1~8 のいずれかの方法において、頭頂生成物として回収されるホルムアルデヒドを第 1 反応段階へ返送することを特徴とする方法。

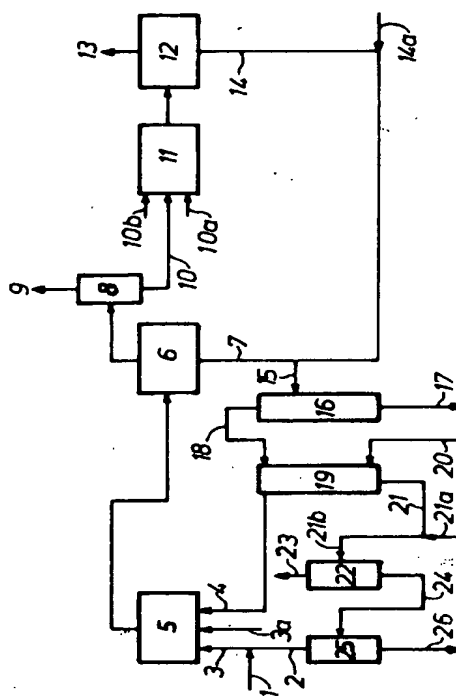
10. 上記 1~9 のいずれかの方法において、ホルムアルデヒド含有の水性相を多段蒸留に供す

特開 昭50—62905 (9)

14. 上配1~13のいずれかの方法で製造したイソブレン。

図面は本発明の方法を説明するためのフローシートを例示する。

代 理 人 弁 理 士 小 田 島 平 吉



1. 明 細 書	1 通
2. 図 面	1 通
3. 委任状及びその訳文	各 1 通
<del>譲渡証書及びその訳文</del>	<del>各 1 通</del>
<del>国籍及び法人証明書並びにこれらの訳文</del>	<del>各 1 通</del>
4. 優先権証明書及びその訳文	各 1 通

住 所 ドイツ連邦共和国ライヒリンゲン・アムビュシエルホフ23  
氏 名 パウル・ロザツカー  
住 所 ドイツ連邦共和国レープエルク・ゼンスタインビュツヘル・  
ヘーゲルストラツセ9  
氏 名 ブルフ・シュバーテル  
住 所 ドイツ連邦共和国オデンタルクレプツシュ・アウフデム  
ブロイヒ5  
氏 名 ボルフガング・スボデンク

住所 東京都港区赤坂1丁目9番15号  
日本自転車会館  
氏名

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**